

内22-59

早稲田大学大学院理工学研究科

# 博 士 論 文 概 要

## 論 文 題 目

窒化物半導体中の  
キャリアダイナミクスに関する研究  
Study on carrier dynamics  
in nitride semiconductor

申 請 者

黒田 剛正

Takamasa Kuroda

物理学及応用物理学専攻 半導体デバイス研究

2002 年 12 月



現在、赤、緑、青などの可視光で発光する発光ダイオード(LED)は大型街頭ディスプレイ、信号機などに幅広く利用されている。このうち、赤や赤外のLEDは1960年代に開発されたが、青色など短波長で発光するLEDの開発は容易ではなかった。その間、青色LEDの研究の主力のひとつはZnSe系の半導体であり、1991年には3M社により、低温(77K)でのレーザ発振が実現された。しかし、現在でも室温連続発振での寿命は500時間程度であり実用寿命(5000時間)にはほど遠い。日亜化学工業(当時)の中村修二氏は1993年に窒化物半導体であるInGaNを、独自のツーフロー有機金属化学気相成長装置で成長させることにより青色LEDの開発に成功した。中村氏はさらに青色LEDの技術を基礎に、青色レーザダイオード(LD)の開発を進め、1995年にパルス発振に成功し、翌年には室温連続発振にも成功した。2002年現在、波長405nm、出力55mWの青紫色LDが実現されている。

レーザ光の集光時のスポットサイズは、波長が短いほど小さくなるため、短波長のLDを用いれば記録用光ディスクの高密度化が可能である。次世代DVD規格(Blu-ray Disc)では発光波長405nmのLDを採用し、現在のDVDの約5倍(片面27GB)の記録容量を達成する。しかし、記録層の2層化には出力100mWのLDが必要と言われており、現在もなおLDの高出力化、長寿命化に向けた研究が行われている。窒化物半導体はまた、大きなバンドギャップや高い電子飽和移動度などのすぐれた半導体特性を持つため、高出力、高速トランジスタなどの電子デバイス実現にも応用できる可能性が高い。

このように現在、窒化物半導体であるInGaNが注目され、多くの研究が行われているが、半導体物性、特に発光再結合過程については未解明の部分が多い。たとえば、InGaNではIn組成の不均一性によりキャリアの拡散が起こる。また、きわめて大きな内部電場が存在するために量子閉じ込めシュタルク効果が発光特性に大きな影響を及ぼす。LEDやLDの発光特性を改善するためには、このような複雑な特性を持つInGaN中でのキャリアの挙動(キャリアダイナミクス)を解明する必要がある。このため、本研究では、時間分解測定法を用いて光励起された(あるいは電流注入された)キャリアが、発光再結合する過程をさまざまな手法と切り口から調べた。本論文は、その研究成果をまとめたものである。

まず、第1章で研究の背景を述べ、研究の目的を明らかにする。また、章末に本論文の構成を示す。

次に第2章ではInGaN量子井戸中の発光過程における量子閉じ込めシュタルク効果と内部電場の遮蔽効果の関わりを明らかにする。InGaN量子井戸のキャリアの再結合過程には2つの現象の関与が報告されている。一

つは歪みによって発生するピエゾ電場などの内部電場によって生じる量子閉じこめシュタルク効果である。内部電場により、量子井戸のポテンシャルが傾くと、実効的なバンドギャップが小さくなるとともに、電子と正孔が空間的に分離するため再結合レートが減少する。その結果、発光エネルギーは低エネルギー側にシフトし、キャリア寿命は伸びる。この現象を量子閉じ込めシュタルク効果というが、井戸中にキャリアが生成されると内部電場は遮蔽され、量子閉じ込めシュタルク効果は抑制される。このため、発光エネルギーとキャリア寿命はキャリア濃度に依存して変化する。もう一つの現象は半導体内でのキャリアの移動である。InGaNではIn組成の均一な膜が成長できないため、ポテンシャルエネルギーの揺らぎが面内に存在する。このため、In組成が低くポテンシャルの高い領域から、In組成が高くポテンシャルエネルギーの低い領域へ、キャリアは拡散し、発光する。したがって、キャリアの移動にともなって、発光エネルギーは低エネルギー側へとシフトする。

本研究では、量子閉じ込めシュタルク効果の影響を調べるためにキャリア濃度を系統的に変化させて時間分解フォトルミネッセンス測定を行った。その結果、キャリア濃度が高いほど発光エネルギーが大きくなり、キャリア寿命が短くなることが明らかになった。この結果は量子閉じ込めシュタルク効果とキャリアによる内部電場の遮蔽効果で定性的に説明できる。本研究ではさらに、定量的な解析を行うため、シュレーディンガー方程式とポアソン方程式をセルフコンシステントに解いて量子閉じ込めシュタルク効果と内部電場の遮蔽効果の大きさを求めた。数値計算によって得られた結果は実験結果とよく一致した。したがって低温のInGaN量子井戸のキャリアの再結合過程では、量子閉じ込めシュタルク効果とキャリアによる内部電場の遮蔽効果が支配的であることがわかった。応用では、量子井戸を薄くすることで、量子閉じ込めシュタルク効果を抑制し、発光再結合レートをあげる必要がある。

LEDやLDは量子井戸構造の活性層をp型およびn型半導体で挟んだpnダイオード構造を有する。外部電源からp型半導体を通じてホールが、n型半導体を通じて電子が供給される。これらの電子とホールは活性層にある量子井戸で再結合し、発光する。p層のアクセプタとしてMgが用いられているが、InGaN半導体では結晶欠陥によりp層にドーパしたMgが活性層にまで拡散する場合があることが報告されている。第3章では拡散したMgが活性層のキャリアの再結合メカニズムに及ぼす影響について述べる。本研究では量子井戸に隣接するGaN層がp型であるかないかで量子井戸のキャリア寿命が温度に依存してどのように変化するかを調べた。計測方法は第2章と同様に時間分解フォトルミネッセンス測定を用いてい

る。その結果、200K 以下では量子井戸の発光特性に違いが見られないのに対し、室温(300K)では p 層を持つ量子井戸の方がキャリア寿命が短くなり、発光強度も弱くなった。この発光特性の劣化は、Mg が非発光再結合中心として働くためと考えられる。低温では、キャリアは In 組成が高く、ポテンシャルの低い領域に局在しているため Mg の非発光再結合中心としての影響は小さく、両サンプルとも発光特性に違いが見られない。しかし、室温では熱エネルギーによりキャリアは移動するため、p 層を持つ量子井戸では非発光再結合中心として働く Mg にキャリアがとらえられるため、発光特性が劣化したと考えられる。InGaN を用いた発光デバイスの発光特性を改善するためには p 層にドーピングする Mg の拡散を抑制することが不可欠であることがわかった。

第 4 章ではエレクトロルミネッセンス測定法を用いた InGaN 発光デバイスにおける電流注入過程の研究について述べる。従来、非常に高速な現象であるキャリアの振る舞いを調べるためには、光パルスによってキャリアを生成する時間分解フォトルミネッセンス測定が行われてきた。本研究で行った電気パルスを用いた時間分解エレクトロルミネッセンス測定では、実際のデバイスと同じく、電流注入でキャリアを生成し、再結合過程を調べられる。したがって、より直接的にデバイス動作中のキャリアの挙動を観測できるという利点を有する。しかし、エレクトロルミネッセンスでは高い時間分解能を得ることが難しく、これまで窒化物半導体の時間分解エレクトロルミネッセンスはほとんど報告されていない。本研究では時間分解能 3ns の時間分解エレクトロルミネッセンス測定を実現した。この時間分解能は緑色発光の InGaN 半導体中のキャリアの再結合過程(10ns~3 $\mu$ s)を観測するには十分な時間分解能である。また、時間分解フォトルミネッセンス測定と時間分解エレクトロルミネッセンス測定の比較を初めて行った。その結果、時間分解エレクトロルミネッセンスでは、発光エネルギーが大きく緩和が早い成分が、キャリア注入直後にあることが観測された。一方、時間分解フォトルミネッセンスではこの発光成分が観測できないことがわかった。この成分は電流注入に関係する発光であると考えられる。

第 5 章は本論文で得られた知見をまとめた。